

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re Application of :  
PETER LAPPE et al :  
Serial No.:  
Filed: Concurrently Herewith :  
For: PROCESS...AND FORMALDEHYDE:

475 Park Avenue South  
New York, N.Y. 10016  
March 19, 2004

**PRIORITY DOCUMENT**

Commissioner for Patents  
P.O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

Sir:

With respect to the above-captioned application, Applicants claim the priority of the attached application as provided by 35 U.S.C. 119.

Respectfully submitted,  
Muserlian, Lucas and Mercanti

  
\_\_\_\_\_  
Charles A. Muserlian, 19,683  
Attorney for Applicants  
Tel. # (212) 661-8000

CAM:ds  
Encl.: German priority application No. 103 16 375.1  
Filed: April 10, 2003  
Return receipt postcard

# BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



## Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

**Aktenzeichen:** 103 16 375.1

**Anmeldetag:** 10. April 2003

**Anmelder/Inhaber:** Celanese Chemicals Europe GmbH,  
61476 Kronberg/DE

**Bezeichnung:** Verfahren zur Herstellung von N-Methyl-  
dialkylaminen aus sekundären Dialkylaminen und  
Formaldehyd

**IPC:** C 07 C 209/28

**Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ur-  
sprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.**

München, den 28. Januar 2004  
**Deutsches Patent- und Markenamt**  
**Der Präsident**  
Im Auftrag

Hintermeier

5

Celanese Chemicals Europe GmbH, 61476 Kronberg

10

Verfahren zur Herstellung von N-Methyl-dialkylaminen aus sekundären  
Dialkylaminen und Formaldehyd

15

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von N-Methyl-dialkylaminen aus sekundären Aminen und Formaldehyd.

20 Tertiäre Amine und insbesondere N-Methyl-dialkylamine besitzen als wichtige Zwischenprodukte für die chemische Industrie eine große wirtschaftliche Bedeutung. Sie werden als Vulkanisationsbeschleuniger in der Gummiindustrie oder als Polymerisations- und Härtungskatalysatoren für die Herstellung von Kunststoffformkörpern auf Epoxid- und Polyurethanbasis eingesetzt.

25 Ferner sind sie als Korrosionsinhibitoren und als Ausgangsstoffe für Detergentien und Flockungsmittel geeignet. N-Methyl-dialkylamine haben ebenfalls Bedeutung als wertvolle Zwischenprodukte für die Herstellung von pharmazeutischen Produkten oder von Substanzen erlangt, die im Pflanzenschutzbereich eingesetzt werden.

30

Aufgrund der hohen technischen Bedeutung von N-Methyl-dialkylaminen finden sich in der wissenschaftlichen und technischen Literatur zahlreiche Hinweise für ihre Herstellung.

35 Es ist bekannt, tertiäre Amine ausgehend von sekundären Aminen durch Umsetzung mit Carbonylverbindungen in Gegenwart von Ameisensäure nach Leuckart-Wallach herzustellen (Houben-Weyl; Seite 648; Methodicum Chimi-

cum S.541). Ameisensäure dient als Reduktionsmittel und wird meist in Form von Formamid oder Ammoniumformiat eingesetzt.

Geht man von Formaldehyd als Carbonylkomponente aus, so führt die in

5 Gegenwart von Ameisensäure durchgeführte Reaktion mit sekundären Aminen zu N-Methyl-dialkylaminen. Bei dieser nach Eschweiler-Clarke benannten Methode setzt man pro Mol Amin gewöhnlich 1-1,25 Mol Formaldehyd und 2-4 Mol Ameisensäure ein (Methodicum Chimicum, Band 6, S. 543, Georg Thieme Verlag, Stuttgart 1974). Eine neuere Weiterentwicklung dieses

10 Verfahrens besteht in der N-Methylierung von Aminen unter Mikrowellen-Bestrahlung (Synthetic Communications (1996), 26 (21), 3919-3922).

Aliphatische sekundäre Amine können auch durch Erhitzen mit Formaldehyd auf 120-160°C zu tertiären Aminen methyliert werden. Nach Hoppe Seyler's

15 Zeitschrift für Physiologische Chemie, Walter de Gruyter & Co., 196, 1931, Seiten 81-86, lässt sich die Methylierungsreaktion in Gegenwart 10%iger Formaldehydlösung unter Calciumchloridzusatz oder unter Verwendung von Paraformaldehyd durchführen. Nach dem bekannten Verfahren wird das aliphatische sekundäre Amin in Form seines Hydrochlorids eingesetzt. Auch

20 wird ein hoher Formaldehydzusatz benötigt, wobei je Mol aliphatischem sekundären Amin bis zu 42 Mol Paraformaldehyd eingesetzt werden.

Auch nach Berichte 45, 1912, Seiten 2404-2409 erhält man durch Einwirken einer 40%igen Lösung von Formaldehyd auf Phenylethylamin-chlorhydrat N-

25 Dimethylphenylethylamin.

In der Literatur werden zudem noch weitere zahlreiche Methoden zur Herstellung von N-Methyl-dialkylaminen beschrieben. So kann zum Beispiel N-Methyl-di-n-propylamin durch Umsetzung von Di-n-propylamin mit Methyl-30 iodid in guten Ausbeuten erhalten werden (Chem. Ber. 33, 1900, 1439-1440). Anstelle von Methyliodid ist auch die Verwendung von Dimethylsulfat als Alkylierungsmittel (J. Chem. Soc. 105, 1914, 2766) oder von Methyltrimeth-

oxyphosphoniumtetrafluoroborat (J. Org. Chem. 49 (25), 1984, 4877-4880) beschrieben.

5 Im industriellen Maßstab erfolgt die Herstellung von N-Methyl-dialkylaminen aus Formaldehyd und sekundären Aminen durch katalytische Hydrierung mit Wasserstoff am Metallkontakt, beispielsweise an Nickel- oder Palladiumkatalysatoren.

10 Nach US 4,757,144 erfolgt die Herstellung von tertiären Aminen aus primären oder sekundären Aminen und Formaldehyd durch eine Suspensionshydrierung in Gegenwart von Palladium oder Platinkontakten. Die Hydrierung wird bei einer Temperatur von 80°C bis 180°C und bei einem Druck von 0,29 bis 4,9 MPa Überdruck durchgeführt.

15 EP-A1-0 492 771 beschreibt ebenfalls ein katalytisches Verfahren zur Herstellung von N-Methyl-diakylaminen ausgehend von sekundären Alkylaminen in Gegenwart von Formaldehyd. Die Reaktionspartner werden bei einem Druck von 0,8/bis 28 MPa und einer Temperatur von 100 bis 150°C am Festbettkontakt zur Reaktion gebracht. Als Katalysator wird ein mit Übergangsmetallen, vorzugsweise ein mit Kupfer und Chrom dotierter Nickelkontakt eingesetzt.

20 Auch DE-A1-35 44 510 befasst sich mit der Herstellung aliphatischer tertiärer Amine ausgehend von primären oder sekundären Aminen durch Reaktion mit Formaldehyd. Die zunächst gebildeten N-Methylolamine werden anschließend bei Temperaturen von 50 bis 200°C und Drücken von 0,1 bis 10 MPa in Suspension an feinverteilten Palladium- oder Palladiumkatalysatoren hydriert.

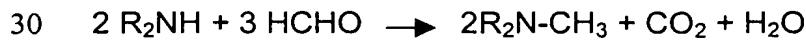
30 Die bekannten Verfahren zur Herstellung von N-Methyl-dialkylaminen ausgehend von sekundären Alkylaminen und Formaldehyd erfordern entweder die Anwesenheit eines speziellen zugesetzten Reduktionsmittels, beispielsweise

von Ameisensäure, oder eines Hydrierkatalysators und Wasserstoff. Beide Verfahrensvarianten sind aufwendig, denn die Verwendung spezieller Reduktionsmittel, wie Ameisensäure, erfordert aufgrund ihrer korrosiven Wirkung speziell ausgelegte Apparatewerkstoffe. Auch die Bereitstellung einer 5 mit Wasserstoff durchgeführten katalytischen Hydrierstufe ist aufwendig und erfordert zusätzlich eine Wasserstoffquelle sowie eine Versorgung mit metallhaltigen Hydrierkatalysatoren. Ebenfalls ist für die Entsorgung der erschöpften Hydrierkatalysatoren Sorge zu tragen. Daher besteht ein Bedarf nach einem möglichst einfachen und kostengünstigen Verfahren zur Her-  
10 stellung von N-Methyl-dialkylaminen.

Überraschenderweise wurde gefunden, dass sekundäre Alkylamine bei nur geringem Überschuß an Formaldehyd in sehr hohen Ausbeuten zu den entsprechenden N-Methyl-dialkylaminen umgesetzt werden können.

15 Die Erfindung besteht daher in einem Verfahren zur Herstellung von N-Methyl-di-alkylaminen aus sekundären Dialkylaminen und Formaldehyd bei einer Temperatur von 100 bis 200°C. Es ist dadurch gekennzeichnet, dass man pro Mol sekundärem Dialkylamin 1,5 bis 3 Mol Formaldehyd einsetzt,  
20 das erhaltene Reaktionsprodukt entgast, die wässrige Phase abtrennt und die organische Phase destilliert.

Überraschenderweise lassen sich bei dem gewählten Molverhältnis Dialkylamin zu Formaldehyd die gewünschten N-Methyl-dialkylamine auf einfache 25 Weise in hohen Ausbeuten erhalten. Ohne das Reaktionsgeschehen mechanistisch deuten zu wollen wird angenommen, dass die Umsetzung von einem Mol sekundärem Alkylamin mit 1,5 Mol Formaldehyd nach folgender Stöchiometrie abläuft:



Für die Durchführung des beanspruchten Verfahrens ist es daher wesentlich, die Menge an Formaldehyd, die über der stöchiometrisch erforderlichen Menge liegt, auf einen engen Bereich zu begrenzen, um die Bildung unerwünschter Nebenprodukte zu unterdrücken und den Verlust an Ausgangs-

5 stoffen gering zu halten. Pro Mol an sekundärem Alkylamin sind 1,5 bis 3, vorzugsweise 1,5 bis 2,5 Mol Formaldehyd einzusetzen.

Das beanspruchte Verfahren wird bei einer Temperatur von 100 bis 200°C, vorzugsweise von 120 bis 160°C durchgeführt. Man arbeitet bei Eigendruck,

10 der sich infolge der gewählten Reaktionstemperatur einstellt. Die Reaktion kann kontinuierlich oder diskontinuierlich gefahren werden.

Nach beendeter Reaktion wird das Wasser und die organische Phase enthaltende Reaktionsprodukt zunächst abgeführt und dann entgast, um gebil-

15 detes CO<sub>2</sub> auszutreiben. Dazu wird das Rohgemisch abgekühlt und gegebenenfalls nach Zusatz eines organischen Lösungsmittels, wie Isopropanol, unter Normaldruck bei erhöhter Temperatur behandelt, gegebenenfalls auch destilliert. Der zu wählende Temperaturbereich hängt von der Siedelage der organischen Produkte, insbesondere von den Siedepunkten des Dialkyl-  
20 amins und des gewünschten N-Methyl-dialkylamins ab und liegt im allgemeinen in einem Temperaturbereich von 50 bis 150°C.

Nach der Entgasung des Reaktionsgemisches wird die organische Produktphase von der wässrigen Phase geschieden, beispielsweise durch Überleiten

25 über eine Membran oder durch einfache Phasentrennung, gegebenenfalls nach Zusatz eines organischen Lösungsmittels wie n-Hexen-1 zur Unterstützung der Phasentrennung. Danach folgt die fraktionierte Destillation des vom Wasser befreiten Rohproduktes unter konventionellen Bedingungen.

30 Formaldehyd kommt üblicherweise als wässrige Lösung mit einer Konzentration von 10 bis 60 Gew.-% zum Einsatz. Vorzugsweise verwendet man eine

wässrige Formaldehydlösung mit einem Gehalt von 25 bis 40 Gew.-% Formaldehyd.

Das sekundäre Dialkylamin wird in unverdünnter Form ohne Lösungsmittel-  
5 zusatz zugegeben. Als sekundäre Dialkylamine kommen gemischte oder  
symmetrische cycloaliphatische oder aliphatische Dialkylamine mit geradket-  
tigen oder verzweigten, gesättigten oder ungesättigten Alkylgruppen mit je-  
weils 2 bis 20 Kohlenstoffatomen, insbesondere 2 bis 15, bevorzugt 2 bis 9  
10 Kohlenstoffatomen, oder mit Arylalkylgruppen mit jeweils 7 bis 15 Kohlen-  
stoffatomen in Betracht.

Stellvertretend für cycloaliphatische sekundäre Amine sind Dicyclohexylamin und für aliphatische sekundäre Amine Di-n-propylamin, Di-n-butylamin, Di-n-pentylamin, Di-2-ethylhexylamin und Diisonylamin zu nennen.

15 Aber auch gemischte cycloaliphatische, aliphatische Dialkylamine wie N-Ethylcyclohexylamin, lassen sich nach dem erfindungsgemäßen Verfahren in die tertiären Amine überführen. Stellvertretend für sekundäre Dialkylamine mit ungesättigten Alkylgruppen steht Diallylamin. Dibenzylamin steht bei-  
20 spielhaft für ein sekundäres Dialkylamin mit Arylalkylgruppen.

Das erfindungsgemäße Verfahren ist besonders zur Herstellung von N-Methyl-di-n-butylamin und N-Methyl-di-n-propylamin geeignet.

25 Die beanspruchte Arbeitsweise gestattet einen eleganten und einfachen Zu-  
gang zu N-Methyl-dialkylaminen in überraschend hohen Ausbeuten und als  
Nebenprodukte fallen nur Wasser und Kohlendioxid an, die problemlos aus  
dem Reaktionsgemisch entfernt werden können. Hingegen gestalten sich die  
bekannten Verfahren durchweg komplexer und liefern die gewünschten N-  
30 Methyl-dialkylamine in meist geringeren Ausbeuten.

Die nachfolgend aufgeführten Beispiele belegen die Erfindung, ohne sie einzuschränken.

Beispiel 1

5

Herstellung von N-Methyl-diethylamin

149,3 g (2,0 mol) Diethylamin (98 %-ig) und 330,2 g (3,2 mol) Formaldehyd (29,1 %-ig) werden in einem 1l-Autoklav vorgelegt und auf 120°C erwärmt.

10 Die Reaktionszeit bei dieser Temperatur beträgt 8 Std., wobei sich ein Druck von max. 1,44 MPa einstellt. Danach wird das Reaktionsgemisch abgekühlt und destillativ aufgearbeitet.

Dazu wird das Rohamin (wässrige und organische Phase) mit 200,0 g

15 Isopropanol versetzt, in einen 1 l Kolben überführt und unter Röhren langsam auf 60°C erwärmt. Dabei beginnt eine leichte Gasentwicklung, die beim Erreichen einer Temperatur von ca. 75°C beendet ist. Danach wird unter Normaldruck vom/Rückstand abdestilliert, es wird eine Destillatmenge von 614,4 g isoliert. Dieses Destillat wird zur Wasserabtrennung über eine  
20 Membrane geleitet und anschließend fraktioniert destilliert, das Amin siedet bei 63 – 65°C. Es werden 168,8 g Wertprodukt mit einer Reinheit von 96,0 % isoliert, dies entspricht einer Ausbeute von 93,0 % d.Th.

Beispiel 2

25

Herstellung von N-Methyl-di-n-butylamin

Analog Beispiel 1 werden 258,5 g (2,0 mol) Di-n-butylamin und 330,2 g (3,2 mol) Formaldehyd (29,1 %-ig) in einem 1l-Autoklav umgesetzt, dabei stellt

30 sich bei einer Temperatur von 120°C ein Druck von max. 3,2 MPa ein. Nach Entgasung des Rohamins (wässrige und organische Phase) bei einer Temperatur von max. 80°C, erfolgt die Abtrennung des Wassers an einem Was-

serabscheider. Die verbleibende organische Phase wird anschließend fraktioniert destilliert. Es werden 274,6 g N-Methyl-di-n-butylamin mit einer Reinheit von 99,6 % isoliert, dies entspricht einer Ausbeute von 95,6 % d.Th.

## 5 Beispiel 3

### Herstellung von N-Methyl-N-ethyl-n-butylamin

Analog Beispiel 1 werden 202,4 g (2,0 mol) N-Ethyl-n-butylamin und 330,2 g (3,2 mol) Formaldehyd (29,1 %-ig) in einem 1l-Autoklav umgesetzt, dabei stellt sich bei einer Temperatur von 120°C ein Druck von max. 2,2 MPa ein. Nach Entgasung des Rohamins (wässrige und organische Phase) bei einer Temperatur von max. 88°C, erfolgt die Abtrennung des Wassers an einem Wasserabscheider. Die verbleibende organische Phase wird anschließend fraktioniert destilliert. Es werden 223,0 g N-Methyl-N-ethyl-n-butylamin mit einer Reinheit von 97,8 % isoliert, dies entspricht einer Ausbeute von 94,7 % d.Th.

## 20 Beispiel 4

### Herstellung von N-Methyl-N-Ethyl-1.2-dimethylpropylamin

Analog Beispiel 1 werden 230,4 g (2,0 mol) N-Ethyl-1.2-dimethylpropylamin und 330,2 g (3,2 mol) Formaldehyd (29,1 %-ig) in einem 1l-Autoklav umgesetzt, dabei stellt sich bei einer Temperatur von 120°C ein Druck von max. 2,3 MPa ein. Nach Entgasung des Rohamins (wässrige und organische Phase) bei einer Temperatur von max. 94°C, erfolgt die Abtrennung des Wassers an einem Wasserabscheider. Die verbleibende organische Phase wird anschließend fraktioniert destilliert. Es werden 251,7 g N-Methyl-N-ethyl-1.2-dimethylpropylamin mit einer Reinheit von 98,6 % isoliert, dies entspricht einer Ausbeute von 96,0 % d.Th.

Beispiel 5Herstellung von N-Methyl-diamylamin

5

Analog Beispiel 1 werden 314,4 g (2,0 mol) Diamylamin (technisches Gemisch aus 18,3 Gew.-% Diisopentylamin, 61,0 Gew.-% Di-n/i-pentylamin und 19,2 Gew.-% Di-n-pentylamin, Rest: 1,5 Gew.-%) und 330,2 g (3,2 mol) Formaldehyd (29,1 %-ig) in einem 1l-Autoklav umgesetzt, dabei stellt sich bei

10 einer Temperatur von 120°C ein Druck von max. 2,5 MPa ein. Nach Entgasung des Rohamins (wässrige und organische Phase) bei einer Temperatur von max. 102°C erfolgt die Abtrennung des Wassers an einem Wasserabscheider. Die verbleibende organische Phase wird anschließend destilliert. Es werden 329,1 g N-Methyl-diamylamin mit einer Reinheit von 91,8 %

15 isoliert, dies entspricht einer Ausbeute von 88,3 % d.Th.

Beispiel 6

/

Herstellung von N-Methyl-di-2-ethylhexylamin

20

Analog Beispiel 1 werden 181,1 g (0,75 mol) Di-2-ethylhexylamin und 193,5 g (1,88 mol) Formaldehyd (29,1 %-ig) in einem 1l-Autoklav umgesetzt, dabei stellt sich bei einer Temperatur von 160°C ein Druck von max. 1,9 MPa ein. Nach Entgasung des Rohamins (wässrige und organische Phase) bei einer

25 Temperatur von max. 100°C, erfolgt die Abtrennung des Wassers unter Zusatz von 50 g n-Hexen-1 an einem Wasserabscheider. Die verbleibende organische Phase wird anschließend destilliert. Es werden 185,1 g N-Methyl-di-2-ethylhexylamin mit einer Reinheit von 91,4 % isoliert, dies entspricht einer Ausbeute von 88,3 % d.Th.

30

Beispiel 7Herstellung von N-Methyl-diisonylamin

5

Analog Beispiel 1 werden 202,1 g (0,75 mol) Di-isonylamin und 170,3 g (1,65 mol) Formaldehyd (29,1 %-ig) in einem 1l-Autoklav umgesetzt, dabei stellt sich bei einer Temperatur von 160°C ein Druck von max. 1,9 MPa ein. Nach Reaktionsende wird die organische Phase von der Wasserphase abgetrennt, die verbleibende organische Phase wird anschließend destilliert. Es werden 208,0 g N-Methyl-diisonylamin mit einer Reinheit von 85,0 % isoliert, dies entspricht einer Ausbeute von 83,2 % d.Th.

10

Beispiel 8

15

Herstellung von N-Methyl-N-ethylcyclohexylamin

Analog Beispiel 1 werden 190,8 g (1,5 mol) N-Ethylcyclohexylamin und 247,6 g (2,4 mol) Formaldehyd (29,1 %-ig) in einem 1l-Autoklav umgesetzt, dabei stellt sich bei einer Temperatur von 160°C ein Druck von max. 2,6 MPa ein. Nach Reaktionsende werden 30 g Hexen-1 zugesetzt und die organische Phase wird von der Wasserphase abgetrennt. Die verbleibende organische Phase wird anschließend fraktioniert destilliert. Es werden 196,9 g N-Methyl-N-ethylcyclohexylamin mit einer Reinheit von 98,7 % isoliert, dies entspricht einer Ausbeute von 91,8 % d.Th.

20

Nach Reaktionsende werden 30 g Hexen-1 zugesetzt und die organische Phase wird von der Wasserphase abgetrennt. Die verbleibende organische Phase wird anschließend fraktioniert destilliert. Es werden 196,9 g N-Methyl-N-ethylcyclohexylamin mit einer Reinheit von 98,7 % isoliert, dies entspricht einer Ausbeute von 91,8 % d.Th.

25

Beispiel 9Herstellung von N-Methyl-dibenzylamin

30

Analog Beispiel 1 werden 197,3 g (1,0 mol) Dibenzylamin und 165,1 g (1,6 mol) Formaldehyd (29,1 %-ig) in einem 1l-Autoklav umgesetzt, dabei stellt

sich bei einer Temperatur von 160°C ein Druck von max. 1,8 MPa ein. Nach Reaktionsende werden 30 g Hexen-1 zugesetzt und die organische Phase wird von der Wasserphase abgetrennt. Die verbleibende organische Phase wird anschließend destilliert. Es werden 191,8 g N-Methyl-dibenzylamin mit 5 einer Reinheit von 93,8 % isoliert, dies entspricht einer Ausbeute von 85,1 % d.Th.

#### Beispiel 10

##### 10 Herstellung von N-Methyl-dicyclohexylamin

Analog Beispiel 1 werden 204,0 g (1,13 mol) Dicyclohexylamin und 185,5 g (1,80 mol) Formaldehyd (29,1 %-ig) in einem 1l-Autoklav umgesetzt, dabei stellt sich bei einer Temperatur von 160°C ein Druck von max. 2,4 MPa ein. 15 Nach Reaktionsende werden 50 g Hexen-1 zugesetzt und die organische Phase wird von der Wasserphase abgetrennt. Die verbleibende organische Phase wird anschließend destilliert. Es werden 226,3 g N-Methyl-dicyclohexylamin mit einer Reinheit von 93,7 % isoliert, dies entspricht einer Ausbeute von 96,1 % d.Th.

20

#### Beispiel 11

##### Herstellung von N-Methyl-diallylamin

25 Analog Beispiel 1 werden 194,3 g (2,0 mol) Diallylamin und 330,2 g (3,2 mol) Formaldehyd (29,1 %-ig) in einem 1l-Autoklav umgesetzt, dabei stellt sich bei einer Temperatur von 120°C ein Druck von max. 2,5 MPa ein. Nach Entgasung des Rohamins (wässrige und organische Phase) bei einer Temperatur von max. 87°C, erfolgt die Abtrennung des Wassers an einem Wasserabscheider. Die verbleibende organische Phase wird anschließend fraktioniert 30 destilliert. Es werden 216,3 g N-Methyl-diallylamin mit einer Reinheit von 95,7 % isoliert, dies entspricht einer Ausbeute von 93,1 % d.Th.

Patentansprüche

5 1. Verfahren zur Herstellung von N-Methyl-dialkylaminen aus sekundären  
Dialkylaminen und Formaldehyd bei einer Temperatur von 100 bis  
200°C, dadurch gekennzeichnet, dass man pro Mol sekundärem Dial-  
kylamin 1,5 bis 3 Mol Formaldehyd einsetzt, das erhaltene Reaktions-  
produkt ent gast, die wässrige Phase abtrennt und die organische Phase  
destilliert.

10 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass man pro  
Mol sekundärem Dialkylamin 1,5 bis 2,5 Mol Formaldehyd einsetzt.

15 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass man  
bei einer Temperatur von 120 bis 160°C arbeitet.

20 4. Verfahren/nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, dadurch  
gekennzeichnet, dass man als sekundäre Dialkylamine gemischte oder  
symmetrische cycloaliphatische oder aliphatische Dialkylamine mit ge-  
radkettigen oder verzweigten, gesättigten oder ungesättigten Alkylgrup-  
pen mit jeweils 2 bis 20 Kohlenstoffatomen oder mit Arylalkylgruppen  
mit jeweils 7 bis 15 Kohlenstoffatomen einsetzt.

25 5. Verfahren nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, dass man als  
sekundäre Dialkylamine gemischte oder symmetrische cycloaliphati-  
sche oder aliphatische Dialkylamine mit geradkettigen oder verzweig-  
ten, gesättigten oder ungesättigten Alkylgruppen mit jeweils 2 bis 15  
Kohlenstoffatomen, vorzugsweise 2 bis 9 Kohlenstoffatomen einsetzt.

30 6. Verfahren nach einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3 zur  
Herstellung von N-Methyl-di-n-butylamin oder N-Methyl-di-n-propylamin.

Zusammenfassung

5 Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von N-Methyl-dialkylaminen durch Umsetzung von sekundären Dialkylaminen mit Formaldehyd bei einer Temperatur von 100 bis 200°C, wobei man je Mol sekundärem Dialkylamin 1,5 bis 3 Mol Formaldehyd einsetzt und das erhaltene Reaktionsprodukt entgast, die wässrige Phase abtrennt und die organische Phase destilliert.

10

/